

日本国特許庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

#7

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日

Date of Application:

2000年 5月18日

出願番号

Application Number:

特願2000-145903

出願人

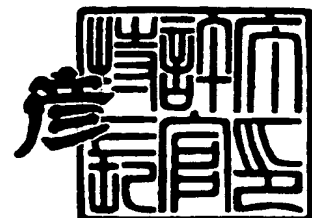
Applicant(s):

東洋紡績株式会社
豊田合成株式会社

2000年 6月29日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近藤 隆彦



出証番号 出証特2000-3053804

【書類名】 特許願

【整理番号】 00-223

【提出日】 平成12年 5月18日

【あて先】 特許庁長官 近藤 隆彦 殿

【国際特許分類】 C08L 67/02

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡績株式会社
総合研究所内

【氏名】 葭原 法

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県大津市堅田二丁目1番1号 東洋紡績株式会社
総合研究所内

【氏名】 小杉 仁志

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市中区栄3丁目2番3号 東洋紡績株式会
社 名古屋支社内

【氏名】 大上 研二郎

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市中区栄3丁目2番3号 東洋紡績株式会
社 名古屋支社内

【氏名】 中村 英弘

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1番地 豊田合
成株式会社内

【氏名】 小笠原 豊

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1番地 豊田合
成株式会社内

【氏名】 尾形 正裕

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑 1 番地 豊田合成株式会社内

【氏名】 渡辺 悟

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑 1 番地 豊田合成株式会社内

【氏名】 小泉 順二

【特許出願人】

【識別番号】 000003160

【氏名又は名称】 東洋紡績株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000241463

【氏名又は名称】 豊田合成株式会社

【代理人】

【識別番号】 100102211

【弁理士】

【氏名又は名称】 森 治

【選任した代理人】

【識別番号】 100056800

【弁理士】

【氏名又は名称】 林 清明

【先の出願に基づく優先権主張】

【出願番号】 平成11年特許願第165355号

【出願日】 平成11年 6月11日

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 028727

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9503780

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 エンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）60～92重量％、タルク（B）5～15重量％、ポリオレフィン系重合体（C）3～25重量％を含有するポリエステル系樹脂組成物であって、該ポリエステル系樹脂組成物の曲げ破壊歪みが3.5％以上、荷重たわみ温度が180℃以上であることを特徴とするエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物。

【請求項 2】 ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）がゲルマニウムを含有することを特徴とする請求項 1 記載のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、エンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物、特に、耐熱性、耐衝撃性、遮音性、外観、成形性などに優れた自動車や自動二輪車などのエンジン周辺部品を形成する樹脂として優れているポリエステル系樹脂組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

エンジン周辺部品の一例としてエンジンカバーは、自動車のエンジンの上部にセットされ、エンジンと配線や配管との接触防止や防音の作用を持つ部品であり、エンジンのエンブレムも兼ねている。そして、従来、自動車や自動二輪車などのエンジン周辺部品には、ポリプロピレン系樹脂やポリアミド系樹脂などの合成樹脂製のものが使用されていた。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

上記従来のエンジン周辺部品用樹脂組成物では、エンジンルームをコンパクトに

設計する場合、ポリプロピレン系樹脂製の有する耐熱性では溶融したり、変形がおこる可能性があることからより高い耐熱性のある材料の開発要求があった。また、ポリアミド系樹脂製の場合、使用時吸水による寸法変化があり、装着位置などの条件が狭く問題であった。また、エンジンルーム内は120℃以上になるため変色するので、このような観点からも好ましい材料とは言えなかった。

【0004】

本発明は、上記従来のエンジン周辺部品用樹脂組成物の有する問題点を解決し、成形性、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、遮音性に優れ、熱変色や吸水による寸法変化の小さいエンジン周辺部品とすることができるエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物は、ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）60～92重量%、タルク（B）5～15重量%、ポリオレフィン系重合体（C）3～25重量%を含有するポリエステル系樹脂組成物であって、該ポリエステル系樹脂組成物の曲げ破壊歪みが3.5%以上、荷重たわみ温度が180℃以上であることを特徴とする。

【0006】

ここで、曲げ破壊歪みは、射出成形により成形したテストピース（13×6.4×127mm）をASTM-D-790にて23℃の温度下で曲げ試験を行い、破壊時のたわみ量から最外層の歪みを計算して得た歪みを曲げ破壊歪みとした値（%）、荷重たわみ温度は、射出成形により成形したテストピース（13×6.4×127mm）をASTM-D-648にて0.46MPaの荷重下で測定した温度（℃）である。

【0007】

また、本発明組成物が利用されるエンジン周辺部品としては、エンジンカバー、シリンダーヘッドカバー、エアインテークパイプ、オイルパン、タイミングベルトカバー、インテークマニホールド、フィルターキャップ、スロットルボディ、クーリングファンなどが挙げられる。

【 0 0 0 8 】

上記の構成からなる本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物は、成形性、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、遮音性に優れ、熱変色や吸水による寸法変化の小さいエンジン周辺部品とすることができる。

【 0 0 0 9 】

この場合において、ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）がゲルマニウムを含有することができる。

【 0 0 1 0 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物の実施の形態を説明する。

【 0 0 1 1 】

本発明では、ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）を、前記ポリエステル系樹脂組成物中 6 0 ～ 9 2 重量％含有するが、ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）とは、ポリエチレンテレフタレート又はエチレンテレフタレート共重合体のことをいい、エチレンテレフタレート共重合体としては、エチレングリコール以外の共重合グリコール成分としては、公知のグリコール成分を共重合することができ、例えば、プロピレングリコール、ブタンジオール、ヘキサメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、シクロヘキサンジメタノール、ジエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリラクトンなどが挙げられる。また、テレフタル酸以外の酸成分としては、公知の酸成分が共重合できるが、例えば、ナフタレンジカルボン酸、イソフタル酸、アジピン酸、セバシン酸などが挙げられる。共重合成分が 2 0 モル％を越えると耐熱性や結晶性が低下するので、エンジン周辺部品としての用途には好ましくない。また、ゲルマニウム触媒を用いて重縮合して得たポリエチレンテレフタレート系重合体は、深みのある表面外観が得られエンジン周辺部品としての商品性の点から好ましい。この場合のゲルマニウムの含有量は、通常 1 ～ 5 0 0 p p m 程度であるのが好ましい。

【 0 0 1 2 】

また本発明においては、上記のポリエチレンテレフタレート系重合体からなるボトル成形品などのリサイクル品をポリエチレンテレフタレート系重合体（A）として用いることができる。これらのポリエチレンテレフタレート系重合体は、結晶性や流動性が低い重合体とされている場合が多いが、本発明の配合割合でタルク、ポリオレフィン系重合体と併用した組成で用いるとエンジン周辺部品用成形材料として使用が可能になるのも本発明の特徴のひとつである。

【 0 0 1 3 】

本発明において用いるタルク（B）は、前記ポリエステル系樹脂組成物中 5 ～ 1 5 重量%含有する。5 重量%より少ないと寸法安定性や高温での剛性が不足する。また、1 5 重量%を越えると耐衝撃性が低下したり、エンジン周辺部品の重量が増加し燃費が低下するので好ましくない。タルクは板状をしており、少量の添加量でエンジン周辺部品の寸法安定性が向上し、外観も良好で本発明の使用目的に適する。タルクの他にガラスビーズ、シリカ、マイカ、炭酸カルシウム、ワラストナイト、カオリン、クレー、ガラス繊維、炭素繊維などの無機強化材を組み合わせ用いてもよい。また、これらの強化材はポリエチレンテレフタレート系重合体との接着性向上、すなわち、エンジン周辺部品の強度や耐衝撃性向上のためシランカップリング剤やチタネート系カップリング剤などを使用してもよい。

【 0 0 1 4 】

また、本発明では、ポリオレフィン系重合体（C）を、ポリエステル系樹脂組成物中 3 ～ 2 5 重量%含有するが、ポリオレフィン系重合体（C）とはポリオレフィン又はオレフィン共重合体のことをいい、ポリオレフィン系重合体（C）の含有量がこれより少ないとエンジン周辺部品の耐衝撃性の改良効果は小さく、また、これを超えると剛性や耐熱性が低下するので好ましくない。ポリオレフィン系重合体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテンなどのポリ- α -オレフィンやエチレン-プロピレン共重合体、エチレン-プロピレン-ジエンモノマー共重合体、エチレン-ブチレン共重合体、エチレン-エチルアクリレート共重合体、エチレン-ビニルアセテート共重合体、エチレン-メチルメタクリレート共重合体、また、これらのメタクリル酸共重合体、アクリル酸共重合体

、メタクリル酸金属塩共重合体、アクリル酸共重合体、ポリオレフィン又はオレフィン共重合体の無水マレイン酸共重合体、ポリオレフィン又はオレフィン共重合体のエポキシ変性体などが挙げられる。特に、ポリオレフィン-メタクリル酸共重合体、ポリオレフィン-メタクリル酸塩共重合体、ポリオレフィン又はオレフィン共重合体の無水マレイン酸変性体、ポリオレフィン又はオレフィン共重合体のエポキシ変性体が好ましい。

【 0 0 1 5 】

エンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物には、耐熱変形性や剛性と耐衝撃性の相反する物性が要求される。即ち、耐熱変形性や剛性は無機強化材を配合すれば改善されるが、硬く脆くなり製品落下テストで破損してしまう。一方、耐衝撃性はポリエチレンテレフタレート系重合体と親和性がある柔軟な樹脂を微分散させることにより改善されるが剛性や耐熱変形性が低下する。また、これらを単純に組み合わせても、改善効果が相殺されたり、マイナス面が残り、耐熱変形性や剛性と耐衝撃性は両立できなく、実用性能を満たせなかった。しかし、成形品が、低荷重下での荷重たわみ温度が180℃以上でかつ曲げ破壊歪み3.5%以上という特性を両立できればエンジン周辺部品としての要求性能が満たされることが見出せた。この領域は、タルクとポリオレフィン系重合体及び／又は特定の組成物で達成が可能になることが分かり、本発明に到った。本発明の組成物がこの領域に入る理由は未だ明確ではないが、タルクとポリエチレンテレフタレート系重合体が、また、ポリオレフィン系重合体とポリエチレンテレフタレート系重合体とそれぞれ強い親和性がありその親和性のバランスよい組み合わせである本発明が、特別な相乗効果を示したと推察している。

【 0 0 1 6 】

さらに、本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物には、常用の添加剤、例えば熱安定剤、耐候剤、耐加水分解剤、顔料を添加してもよい。熱安定剤としては、ヒンダードフェノール系、チオエーテル系、ホスファイト系などやこれらの組み合わせが挙げられる。耐候剤としてはカーボンブラック、ベンゾフェノン系、トリアゾール系、ヒンダードアミン系などが挙げられる。また、耐加水分解剤としてはカルボジイミド、ビスオキサゾリン、エポキシ、イソシアネ

ート化合物などが挙げられる。顔料としてはポリエチレンテレフタレート系重合体用の常用の耐熱顔料が使用される。

【 0 0 1 7 】

本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物は、前記の各構成成分を単軸押出機、2軸押出機やニーダーなどの装置を用いて混練することにより製造することができる。用いられる混練機の種類や混練条件についての制限は特にない。

【 0 0 1 8 】

前記方法などによって得られた本発明エンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物を、例えば、エンジンカバー成形品に成形する方法としては、特に限定されないが、射出成形法によるのが一般的である。なお、エンジンカバーの形状は特に制限されないが箱型、キャップ型が多い。また、得られたエンジンカバー成形品は、成形材料に顔料を配合した原着法や塗装により着色され、吸音材や制振材などを複合した後、ボルト締めなどの方法でエンジンにセットされる。

【 0 0 1 9 】

【実施例】

以下、実施例を用いて本発明を具体的に説明する。なお明細書中におけるテストピースの物性及び箱型成形品の性能評価は以下の方法により測定した。

【 0 0 2 0 】

1) 曲げ破壊歪み：射出成形法により成形したテストピース（13×6.4×127mm）をASTM-D-790にて23℃の温度下で曲げ試験を行ない、破壊時のたわみ量から最外層の歪みを計算して得た歪みを曲げ破壊歪み（％）とした。

【 0 0 2 1 】

2) 荷重たわみ温度：射出成形法により成形した、テストピース（13×6.4×127mm）をASTM-D-648にて0.46MPaの荷重下で測定した。

【 0 0 2 2 】

3) 耐衝撃性：射出成形法により成形した箱型成形品（400×550×80mm

m、厚さ 2 mm) を - 3 0 °C に温度調節し、この成形品を 1 m の高さから落下させ、破損の有無から合否を判定した。

【 0 0 2 3 】

4) 耐熱性：射出成形法により成形した箱型成形品 (4 0 0 × 5 5 0 × 8 0 mm、厚さ 2 mm) を 1 2 0 °C で 7 日処理し、変形、ソリの有無から合否を判定した。

【 0 0 2 4 】

5) 外観：射出成形法により成形した箱型成形品 (4 0 0 × 5 5 0 × 8 0 mm、厚さ 2 mm) について、フローマーク、ウェルドライン・光沢・焼け、ソリをチェックし、○ > △ > × として判断した。

【 0 0 2 5 】

(実施例 1 ~ 2 4、比較例 1 ~ 1 2)

表 1 に示す樹脂、無機強化材、改質樹脂の中から組み合わせを選択し、それらの所定量 (重量%) を計量後予備混合した。この予備混合体それぞれを、シリンダー温度をホッパー側から 2 6 5 - 2 7 0 - 2 7 0 °C に調節した直径 3 0 mm φ の同方向 2 軸押出機のホッパーに投入し、スクリュウ回転数 1 0 0 r p m にて熔融混練しペレットを得た。得られた各々のペレットを 1 4 0 °C で 3 時間乾燥し、シリンダー温度を 2 6 0 - 2 6 5 - 2 6 5 °C に設定した射出成形機と表面温度が 1 2 0 °C の金型を使用し、物性評価用のテストピースを得、それぞれ評価した。その結果を表 1 及び表 2 に示す。

【 0 0 2 6 】

【表1】

	実 施 例																							
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24
PET I	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80
PET II																								
PET III																						85		
タルク	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	5
炭酸カルシウム																								
ワラストナイト																								
シリカ																								
ガラス繊維																								
ガラスビーズ																								5
E/MAH	10																							
E/P/MAH		10																						
E/GMA			10												5									
E/GMA/AS				10														5	2.5	5	7.5	10	10	
E/BEA/MAH					10						5	5												
E/BEA/GMA						10								5										10
E/MMA/MAA							10						5											
E/MMA/MAA/Na								10								5								
E/MMA/MAA/Zn									10								5							
E/BEA										10	5							5						
E/P												5							2.5	5	7.5			
P/MAH													5				5							
PE														5	5									
デビ テスト	190	183	183	185	181	185	192	190	190	192	187	187	183	192	190	187	181	188	198	194	183	182	185	217
曲げ破壊歪み (%)	4.8	5.1	5.9	6.0	5.2	5.1	6.2	4.7	4.6	4.7	5.3	5.0	4.5	5.4	5.3	4.6	4.5	5.3	5.1	5.3	5.6	6.0	5.4	5.5
外観	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
耐衝撃性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
耐熱性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

【0027】

【表2】

	比較例											
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
PET I	80	80	80	80	80	80	80	80	79	79	60	80
PET II												
PET III												
タルク						10	10	10	10	10	10	10
炭酸カルシウム	10											
ワラストナイト		10										
シリカ			10									
ガラス繊維				10								
ガラスビーズ					10							
E/MAH												
E/P/MAH												
E/GMA												
E/GMA/AS												
E/EBA/MAH												
E/EBA/GMA	10	10	10	10	10					1	30	
E/MMA/MAA												
E/MMA/MAA/Na												
E/MMA/MAA/Zn												
E/P												10
ABS						10						
MBS							10					
SEBS								10				
TPU									10			
評価項目												
デビースト	122	135	124	218	135	168	164	171	159	194	163	166
重量たわみ温度(℃)												
曲げ破壊歪み(%)	5.8	6.1	5.5	3.6	5.9	2.9	2.7	3.3	3.3	3.1	8.3	3.2
外観	○	○	○	×	○	×	△	△	×	○	△	△
耐衝撃性	○	○	○	○	○	×	×	×	×	×	○	×
耐熱性	×	×	×	○	×	×	×	○	×	○	×	×

【0028】

表中の略号は次の通りである。

PET I :回収ペットボトルの粉碎品(Ge含有量50ppm)

PET II	: ポリエチレンテレフタレート(分子量約2.5万、Ge含有量50ppm)
PET III	: ポリエチレンテレフタレート(分子量約4万、Ge含有量50ppm)
タルク	: タルク(平均粒径約5ミクロン)
炭酸カルシウム	: 炭酸カルシウム(平均粒径2ミクロン)
ワラストナイト	: ワラストナイト(平均粒径8ミクロン)
シリカ	: シリカ(平均粒径2ミクロン)
ガラス繊維	: ガラス繊維(平均直径10ミクロン・長さ 3 mm)
ガラスビーズ	: ガラスビーズ(平均粒径30ミクロン)
E/MAH	: エチレン-無水マレイン酸共重合体
E/P/MAH	: エチレン-プロピレン-無水マレイン酸共重合体
E/GMA	: エチレン-グリシジルメタクリレート共重合体
E/GMA/AS	: エチレン-グリシジルメタクリレート共重合体アクリルニトリル-スチレン付加物
E/EEA/MAH	: エチレン-エチルアクリレート-無水マレイン酸共重合体
E/EEA/GMA	: エチレン-エチルアクリレート-グリシジルメタクリレート共重合体
E/MMA/MAA	: エチレン-メチルメタクリレート-メタクリル酸共重合体
E/MMA/MAA/Na	: エチレン-メチルメタクリレート-メタクリル酸Na塩共重合体
E/MMA/MAA/Zn	: エチレン-メチルメタクリレート-メタクリル酸Zn塩共重合体
E/EEA	: エチレン-エチルアクリレート共重合体
E/P	: エチレン-プロピレン共重合体
P/MAH	: ポリプロピレン無水マレイン酸変性体
PE	: ポリエチレン
PP	: ポリプロピレン
ABS	: アクリルニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体
MBS	: メチルメタクリレート-ブタジエン-スチレン共重合体
SEBS	: スチレン-ブタジエン共重合体の水添物
TPU	: 熱可塑性ポリウレタン

【 0 0 2 9 】

【発明の効果】

本発明のエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物によれば、成形性、耐

衝撃性、軽量性、耐熱性、遮音性に優れ、熱変色や吸水による寸法変化の小さい
エンジン周辺部品とすることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 成形性、耐衝撃性、軽量性、耐熱性、遮音性に優れ、熱変色や吸水による寸法変化の小さいエンジン周辺部品とすることができるエンジン周辺部品用ポリエステル系樹脂組成物を提供すること。

【解決手段】 ポリエチレンテレフタレート系重合体（A）60～92重量%、タルク（B）5～15重量%、ポリオレフィン系重合体（C）3～25重量%を含有するポリエステル系樹脂組成物であって、該ポリエステル系樹脂組成物の曲げ破壊歪みが3.5%以上、荷重たわみ温度が180℃以上であることを特徴とする。

【選択図】 なし

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 0 0 3 1 6 0]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 1 0 日
[変更理由] 新規登録
住 所 大阪府大阪市北区堂島浜 2 丁目 2 番 8 号
氏 名 東洋紡績株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000241463]

1. 変更年月日 1990年 8月 9日

[変更理由] 新規登録

住 所 愛知県西春日井郡春日町大字落合字長畑1番地
氏 名 豊田合成株式会社